PCT/EP 0 0 / 0 5 4 7 0

office européen

Europäisches **Patentamt** 

**Patent Office** 

Bescheinigung

Certificate

REC'D 2 1 NUV 2000 Attestation **WIPO** PCT

Die angehefteten Unterlagen stimmen mit der ursprünglich eingereichten Fassung der auf dem nächsten Blatt bezeichneten europäischen Patentanmeldung überein.

The attached documents are exact copies of the European patent application conformes à la version described on the following page, as originally filed.

Les documents fixés à cette attestation sont initialement déposée de la demande de brevet européen spécifiée à la page suivante.

Patentanmeldung Nr. Patent application No. Demande de brevet n°

99111538.7

# **PRIORITY DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

> Der Präsident des Europäischen Patentamts; Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

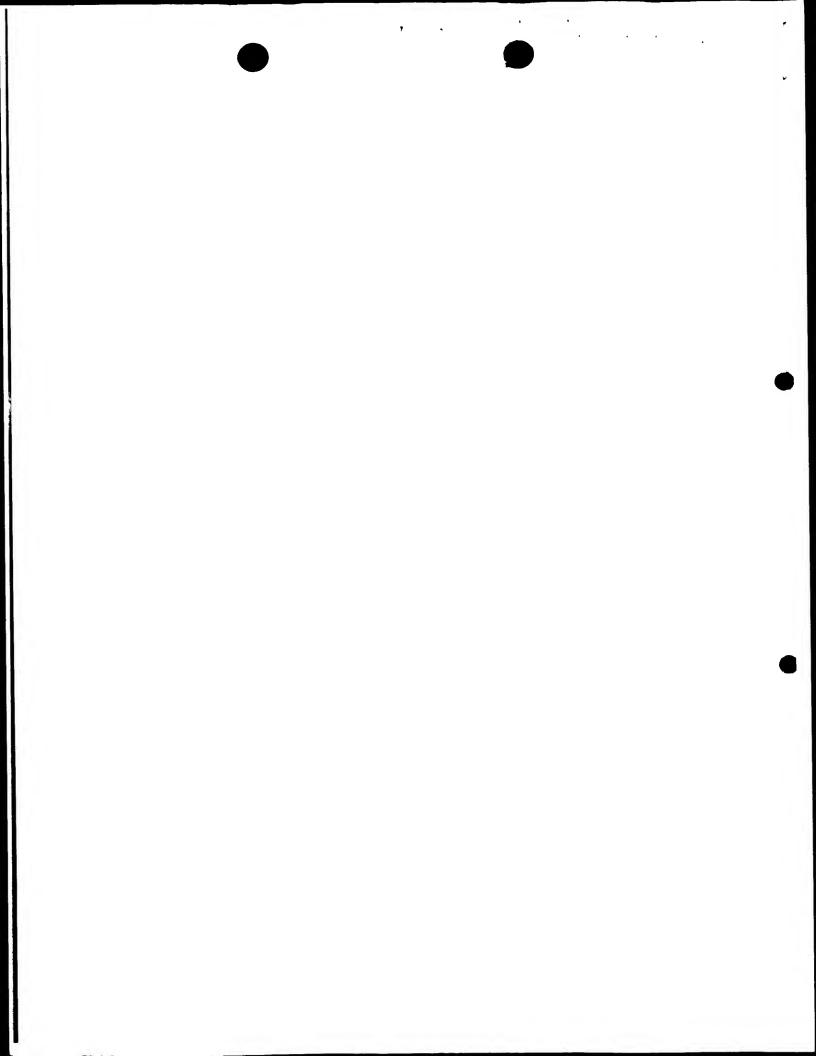
Le Président de l'Office européen des brevets p.o.

I.L.C. HATTEN-HECKMAN

DEN HAAG, DEN THE HAGUE, LA HAYE, LE

14/07/00

EPA/EPO/OEB Form 1014 - 02.91





#### Europäisches **Patentamt**

#### European **Patent Office**

#### Office européen des brevets

15/06/99

## Blatt 2 der Bescheinigung Sheet 2 of the certificate Page 2 de l'attestation

Anmeldung Nr.: Application no.:

99111538.7

Demande n\*:

Anmelder: Applicant(s): Demandeur(s): METHANOL CASALE S.A. 6900 Lugano-Besso SWITZERLAND

Bezeichnung der Erfindung: Title of the invention: Titre de l'invention:

Isothermal catalytic reactor for exothermic or endothermic heterogeneous reactions

In Anspruch genommene Prioriät(en) / Priority(ies) claimed / Priorité(s) revendiquée(s)

Staat:

Tag:

Aktenzeichen:

Anmeldetag:

Date of fiting: Date de dépôt:

State:

File no.

Pays:

Date:

Numéro de dépôt:

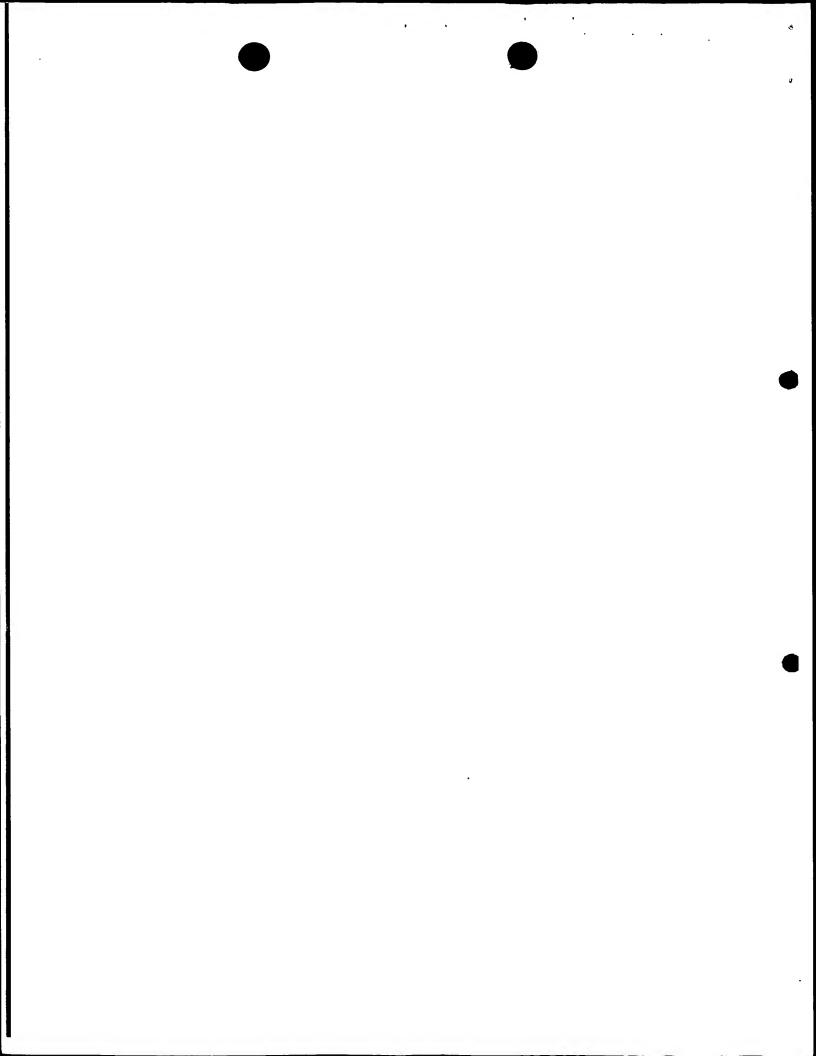
Internationale Patentklassifikation: International Patent classification: Classification internationale des brevets:

B01J8/02

Am Anmeldetag benannte Vertragstaaten: Contracting states designated at date of filing: AT/BE/CH/CY/DE/DK/ES/FI/FR/GB/GR/IE/IT/LI/LU/MC/NL/PT/SE Etats contractants désignés lors du depôt:

Bemerkungen: Remarks: Remarques:

See for Italian title page 1 of the description



SPEC

1

effettuazione di

Titolo: "Reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche"

#### DESCRIZIONE

#### Campo di Applicazione

- La presente invenzione fa riferimento ad un reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche, comprendente:
  - un mantello esterno di forma sostanzialmente cilindrica, preferibilmente verticale;
- almeno un letto catalitico esteso nel mantello e comprendente contrapposte pareti forate laterali di ingresso di un flusso comprendente reagenti rispettivamente di uscita di un flusso comprendente reagiti; ed
- almeno un tubo attraversante tale almeno un letto catalitico per il passaggio di un fluido di raffreddamento o riscaldamento;
- Nel seguito della descrizione e nelle successive rivendicazioni, con il termine di: "reattore isotermo", si intende indicare un reattore in cui la temperatura all'interno del o dei letti catalitici dove avviene la reazione, che può essere di tipo esotermico o endotermico, viene mantenuta sostanzialmente costante.
- Reattori di questo tipo sono ad esempio impiegati per la sintesi di sostanze chimiche quali il metanolo o la formaldeide (reazioni fortemente esotermiche) oppure lo stirene (reazioni fortemente endotermiche).
- Come noto, nel campo della sintesi eterogenea esotermica o endotermica, è sempre più sentita de l'esigenza di realizzare dei reattori isotermi ad

· 5

2

elevata capacità che da un lato siano semplici da realizzare, affidabili e richiedano bassi costi d'investimento e di manutenzione, e dall'altro lato permettano di operare con basse perdite di carico, bassi consumi energetici e con una elevata efficienza di scambio termico tra i reagenti ed il fluido di raffreddamento o riscaldamento.

#### Arte nota

Allo scopo di soddisfare la suddetta esigenza, sono stati proposti nel settore dei reattori isotermi con un letto catalitico di tipo radiale comprendente al suo interno un gran numero di tubi dritti verticali per l'asportazione o l'alimentazione di calore.

Ad esempio in DE-A-3 318 098 viene descritto un reattore isotermo per l'effettuazione di sintesi eterogenee esotermiche o endotermiche dove i reagenti gassosi attraversano radialmente il letto catalitico e vengono in contatto con una pluralità di tubi verticali disposti all'interno di tale letto.

- Secondo una forma di realizzazione, non rappresentata, è pure previsto che i tubi per l'asportazione o l'alimentazione di calore si sviluppano elicoidalmente attorno ad un collettore centrale per la fuoriuscita dal reattore dei gas reagiti.
- 25 In particolare, il fascio di tubi elicoidali si sviluppa verticalmente tra contrapposte piastre tubiere superiore ed inferiore, con i vari tubi tra loro attorcigliati.
- Da notare come configurazioni elicoidali dei tubi per 30 l'asportazione o l'alimentazione di calore sono note anche nei rettori isotermi con letto catalitico

10

15

20

5-06-1999

3

EP99111538.7

assiale. Si veda ad esempio US-A-4 339 413 e US-A-4 636 365.

Pur vantaggioso sotto alcuni aspetti (ad esempio, la configurazione radiale del letto catalitico permette di ottenere in modo semplice ed economico elevate capacità produttive con basse perdite di carico e bassi consumi energetici rispetto ad un letto di tipo assiale), il reattore isotermo con fascio tubiero elicoidale descritto in DE-A-3 318 098 presenta una serie di inconvenienti qui di seguito evidenziati.

Primo fra tutti il fatto che la distribuzione dei tubi sotto forma di un fascio tubiero elicoidale - ancorché migliore rispetto ai tubi dritti verticali - non si adatta efficacemente alla curva di temperatura del flusso di reagenti gassosi che attraversa il letto catalitico con moto radiale.

Infatti, il flusso di gas che fluisce perpendicolarmente rispetto allo sviluppo verticale dei tubi elicoidali, viene in contatto - attraversando il letto catalitico - con tubi diversi a temperature diverse, e ciò provoca una bassa efficienza di scambio termico tra i reagenti gassosi ed il fluido di raffreddamento o riscaldamento.

In altre parole, nel caso di una reazione esotermica con i reagenti gassosi che fluiscono con moto radiale centripeto attraverso il letto catalitico, i tubi elicoidali esterni vengono investiti da un gas che ha appena cominciato a reagire, ed è quindi relativamente freddo, mentre i tubi elicoidali più interni vengono investiti da un gas sempre più caldo e da cui ricevono una quantità di calore sempre maggiore fino ad un punto dove la temperatura del gas di reazione è massima. Da quel punto, la temperatura diminuisce e quindi la quantità di calore che ricevono i tubi elicoidali

disposti in prossimità della parete di uscita gas del letto catalitico è progressivamente minore (vedere DE-A-3 318 098, figura 3).

Ne consegue che ogni tubo elicoidale riceve una diversa quantità di calore e quindi si trova a sopportare un diverso carico termico. Questo provoca una cattiva distribuzione delle temperature nel letto catalitico a scapito dell'efficienza di scambio termico.

Ad esempio, qualora all'interno dei tubi fluisce acqua calda per l'asportazione del calore di reazione che viene trasformata in vapore, risulta evidente come con la configurazione a fascio tubiero elicoidale suggerita in DE-A-3 318 098, nessuno dei tubi produce la stessa quantità di vapore.

- 15 Ciò comporta notevoli problemi di regolazione e di alimentazione/asportazione del fluido di raffreddamento in corrispondenza delle piastre tubiere, così come una cattiva distribuzione dell'acqua e del vapore all'interno di tali tubi.
- A questo proposito è bene osservare come tutti i tubi del reattore isotermo descritto in DE-A-3 318 098 sono tra loro in parallelo, e cioè vengono alimentati da una stessa fonte e scaricano in uno stesso punto. Pertanto la perdita di carico disponibile per ogni tubo elicoidale è la stessa.

In DE-A-3 318 098, i tubi elicoidali a contatto con i reagenti gassosi a bassa temperatura sono soggetti ad un carico termico basso, il che significa basso grado di vaporizzazione dell'acqua con conseguente bassa velocità di efflusso e quindi elevate portate, in massa, d'acqua. I tubi elicoidali a contatto con i reagenti gassosi ad alta temperatura sono invece soggetti ad un carico termico elevato, il che significa

un alto grado di evaporazione dell'acqua con conseguente alta velocità di efflusso e quindi basse portate, in massa, d'acqua.

Pertanto, quando il reattore è in marcia si viene a 5 creare una situazione in cui le eliche soggette ad un carico termico elevato risultano essere quelle alimentate con meno acqua e tendono perciò ad avere un grado di evaporazione sempre maggiore ed una capacità di asportazione del calore sempre minore. Questo porta ad una distribuzione delle temperature all'interno del 10 letto catalitico non ottimale in caso di reazioni moderatamente esotermiche come la sintesi del metanolo, nel caso di reazioni veloci e esotermiche come la sintesi della formaldeide può addirittura portare ad una fuga delle temperature. 15

Inoltre, l'eccessiva evaporazione favorisce la formazione nei tubi di depositi di residui presenti nell'acqua a scapito dell'efficienza di scambio termico degli stessi.

- Tutti questi svantaggi sono indipendenti dal fatto che i tubi siano distribuiti a distanze più o meno ravvicinate a seconda del profilo di temperatura dei reagenti gassosi all'interno del letto catalitico.
- Un ulteriore svantaggio del reattore secondo l'arte 25 nota è dato dall'elevata complessità strutturale e realizzativa risultante dalla conformazione elicoidale del fascio tubiero che richiede elevati costi di investimento e di manutenzione.
- Inoltre la presenza di piastre tubiere che generalmente devono essere molto spesse e quindi costose a causa della differenza di pressione tra i reagenti gassosi ed il fluido di raffreddamento o

riscaldamento - è un elemento limitante per quanto riguarda il numero di tubi che possono venire disposti a scapito ulteriore dell'efficienza di scambio termico del reattore.

Proprio a causa di questi svantaggi, i reattori isotermi per l'effettuazione di sintesi eterogenee esotermiche o endotermiche con letto catalitico radiale e fascio tubiero elicoidale (e tanto meno con fascio tubiero verticale) hanno trovato a tutt'oggi scarsa applicazione pratica, nonostante l'esigenza sempre più sentita nel settore di reattori ad alta capacità.

#### Sommario dell'Invenzione

Il problema che sta alla base della presente invenzione è quello di mettere a disposizione un reattore isotermo 15 per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche endotermiche che sia di semplice attuazione, affidabile e richieda bassi costi di investimento e manutenzione e permetta di operare con basse perdite di carico, bassi consumi energetici e con una elevata 20 efficienza di scambio termico tra i reagenti ed il fluido di raffreddamento o riscaldamento.

Il suddetto problema viene risolto. secondo l'invenzione, da un reattore del tipo più indicato, il quale si caratterizza per il fatto che l'asportazione almeno tubo per un l'alimentazione di calore si sviluppa all'interno dell'almeno un letto catalitico lungo un sostanzialmente perpendicolare rispetto alle pareti laterali di quest'ultimo.

30 Grazie alla presente invenzione, è vantaggiosamente possibile realizzare - in modo semplice ed efficace - un reattore isotermo con un elevato coefficiente di

10

15

20

25

30

7

scambio termico, a tutto vantaggio della resa di conversione e dei consumi energetici.

Infatti, a differenza dei tubi elicoidali secondo l'arte nota che si sviluppano da un capo all'altro del letto catalitico in una direzione sostanzialmente parallela rispetto alle pareti laterali forate di alimentazione rispettivamente estrazione del flusso gassoso, in accordo con la presente invenzione ogni singolo tubo per l'asportazione o l'alimentazione di calore si sviluppa lungo un piano all'interno del letto catalitico sostanzialmente perpendicolare rispetto alle pareti laterali per il passaggio dei reagenti.

In questo modo, il o i tubi si trovano vantaggiosamente ad essere disposti in modo sostanzialmente parallelo rispetto alla direzione di attraversamento del letto catalitico da parte del flusso comprendente reagenti.

Questo significa che ogni singolo tubo è in contatto con una stessa porzione di reagenti e ne segue vantaggiosamente tutte le variazioni di calore, e quindi il profilo di temperatura, di tale porzione di reagenti dall'ingresso all'uscita del letto catalitico.

Di conseguenza, qualora all'interno del o dei letti catalitici sono disposti una pluralità di tubi secondo la presente invenzione, questi si trovano tutti a sopportare vantaggiosamente lo stesso carico termico. Ad esempio, nel caso di una reazione esotermica con acqua calda quale fluido di raffreddamento, i tubi producono tutti la stessa quantità di vapore (uniforme distribuzione dell'acqua e del vapore all'interno dei tubi).

In altre parole, grazie alla presente invenzione ogni tubo è in grado di asportare rispettivamente alimentare la stessa quantità di calore ed è quindi possibile

10

15

20'

25

30

8

ottenere una distribuzione ottimale della temperatura all'interno del letto catalitico, anche per reazioni fortemente esotermiche o endotermiche, a tutto vantaggio dell'efficienza di scambio termico del letto catalitico e quindi della resa di conversione all'interno dello stesso e dei relativi consumi energetici.

Rispetto al reattore isotermo più sopra descritto con riferimento alla tecnica nota, il reattore secondo l'invenzione permette di recuperare o alimentare calore a livello termico più elevato, con conseguente aumento dell'efficienza di scambio termico e della resa di conversione. Oppure a parità di resa di conversione rispetto all'arte nota, l'aumento dell'efficienza di scambio termico consente di diminuire il volume di catalizzatore richiesto con conseguenti risparmi in termini di spazio e di costi di investimento.

Un ulteriore vantaggio risultante dalla presente invenzione, è dato dal fatto che quando all'interno di un letto catalitico sono disposti una pluralità di tubi, questi possono venire alimentati tutti da una stessa fonte in quanto - essendo sottoposti allo stesso carico termico - non vi sono problemi di regolazione per l'alimentazione e l'asportazione del fluido di raffreddamento/riscaldamento.

Da notare infine come il reattore secondo la presente invenzione sia particolarmente semplice da realizzare e non richiede l'impiego di piastre tubiere, con conseguenti notevoli risparmi nei costi di investimento e manutenzione.

Le caratteristiche ed i vantaggi dell'invenzione risulteranno inoltre dalla descrizione, fatta qui di seguito, di un esempio di realizzazione dato a titolo indicativo e non limitativo con riferimento ai disegni allegati.

### Breve descrizione dei disegni

#### In tali disegni:

- 5 la figura l mostra una vista parziale in sezione longitudinale di un reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche secondo una forma di realizzazione della presente invenzione;
- 10 la figura 2 mostra una vista schematica prospettica in scala ingrandita di un dettaglio del reattore di figura 1;
- la figura 3 mostra una vista schematica in sezione longitudinale in scala ingrandita di un dettaglio del reattore di figura 1;
  - la figura 4 mostra un vista schematica in sezione trasversale di un tubo a serpentina a passo costante per il passaggio di un fluido di raffreddamento o riscaldamento, del tipo utilizzato nel reattore di figura 1;
  - la figura 5 mostra un vista schematica in sezione trasversale del tubo di figura 4 a passo variabile;
- La figura 6 mostra una vista in sezione longitudinale di un reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche secondo una ulteriore forma di realizzazione della presente invenzione;
- la figura 7 mostra un vista schematica in sezione trasversale di due tubi a serpentina affiancati per il 30 passaggio di un fluido di raffreddamento o

riscaldamento, del tipo utilizzati nel reattore di figura 6.

# Descrizione dettagliata di una forma di realizzazione preferita

- 5 Con riferimento alle figure 1-5, con 1 è complessivamente indicato un reattore isotermo secondo la presente invenzione per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche.
- Il reattore 1 comprende un mantello 2 esterno di forma sostanzialmente cilindrica, all'interno del quale è alloggiato un letto catalitico, generalmente indicato con 3.
- Il letto 3 catalitico è delimitato lateralmente da contrapposte pareti forate laterali 4 e 5, di ingresso di un flusso comprendente reagenti rispettivamente di uscita di un flusso comprendente reagiti.
  - Generalmente, le sostanze che vengono alimentate al reattore 1 per l'effettuazione di sintesi eterogenee esotermiche o endotermiche sono in fase gassosa.
- Di conseguenza, nel seguito della descrizione, 20 flusso comprendente flusso comprendente reagenti e reagiti, è da intendere un flusso di reagenti gassosi rispettivamente di gas reagiti. È comunque evidente che il reattore secondo la presente invenzione può venire fase liquida, impiegato reazioni in 25 anche per rispettivamente liquida/gassosa.
  - Nell'esempio qui di seguito descritto, le pareti forate 4 e 5 sono quindi gas permeabili per l'ingresso nel letto catalitico 3 di un flusso di reagenti gassosi rispettivamente di uscita di un flusso di gas reagiti.

EP99111538.7

I1 letto 3 catalitico inoltre delimitato inferiormente da un fondo non forato (non permeabile al gas), che corrisponde nell'esempio di figura 1 con il fondo 6 del reattore 1, e superiormente da una parete 7 forata (gas permeabile) per l'attraversamento con moto assiale del letto 3 da parte di una minoritaria dei reagenti gassosi.

Allo scopo di permettere un corretto attraversamento assiale-radiale del letto 3 catalitico, con la parte radiale predeterminante rispetto alla parte assiale, la 10 parete laterale 5 presenta una breve porzione 5' non forata (non permeabile al gas) che si estende da una estremità superiore della stessa.

- La parete 7 permeabile al gas è comunque del tutto 15 avendo principalmente 1a funzione trattenere il catalizzatore (non rappresentato figura 1) all'interno del letto 3, e può quindi venire benissimo tralasciata.
- Alternativamente, qualora richiesto un 20 attraversamento puramente radiale del letto 3 catalitico, viene predisposta una parete 7 non forata o comunque non permeabile al gas.
- Il letto catalitico di tipo radiale e, in maniera ancora più marcata, il letto catalitico di assiale-radiale sono particolarmente vantaggiosi 25 quanto consentono di ottenere alte rese di conversione ed allo stesso tempo basse perdite di carico reagenti gassosi, potendo utilizzare catalizzatori più attivi e di piccola granulometria.
- Tra il mantello 2 e la parete laterale 4 è prevista una 30 intercapedine 8 anulare per consentire una ottimale distribuzione ed alimentazione dei reagenti gassosi nel letto 3 catalitico. A questo scopo, l'intercapedine 8 è

15-06-1999

in comunicazione di fluido con un bocchello 9 di ingresso gas.

A sua volta, la parete laterale 5 definisce al suo interno un condotto 10 per la raccolta e l'espulsione dal reattore del flusso di gas reagiti. A questo scopo, il condotto 10 è in comunicazione di fluido con un bocchello 11 di uscita gas ed è chiuso superiormente da un setto 12 non permeabile al gas.

Per consentire l'asportazione o l'alimentazione di calore ai gas fluenti all'interno del letto 3 catalitico, così da mantenere il reattore l'isotermo, il letto 3 è attraversato da una pluralità di tubi, tutti indicati con 13, per il passaggio di un fluido di raffreddamento rispettivamente riscaldamento.

Il fluido di raffreddamento o riscaldamento viene alimentato ai tubi 13 attraverso un condotto 14 in comunicazione di fluido con uno o più bocchelli di ingresso 15, ed estratto dai tubi 13 tramite un condotto 16 in comunicazione di fluido con uno o più bocchelli di uscita 17.

Il numero di bocchelli 15 rispettivamente 17 (due nell'esempio in questione) viene scelto in base alla portata del fluido di raffreddamento o riscaldamento. Preferibilmente, maggiore è tale portata, maggiore è il numero di bocchelli 15 e 17.

Il o i condotti 14 e sono in comunicazione di fluido con il o i bocchelli 15 tramite un collettore toroidale 14a, mentre il o i condotti 16 e sono in comunicazione di fluido con il o i bocchelli 17 tramite un collettore toroidale 16a.

Secondo un aspetto particolarmente vantaggioso della presente invenzione, i tubi 13 per l'asportazione o

25

l'alimentazione di calore si sviluppano a serpentina all'interno del letto 3 catalitico lungo un piano sostanzialmente perpendicolare rispetto alle pareti laterali 4 e 5 di quest'ultimo.

- Nel seguito della descrizione e nelle successive rivendicazioni, con il termine di: "tubo a serpentina", si intende indicare un tubo sostanzialmente curviforme oppure con dei tratti curviformi alternati a dei tratti rettilinei.
- Così facendo, ogni tubo 13 viene investito per tutta la sua lunghezza da una stessa porzione di gas reagenti, potendone così seguire tutte le variazioni termiche, e quindi il profilo di temperatura, di tale porzione di gas dall'ingresso all'uscita del letto 3 catalitico.
- Inoltre, i tubi 13 conformati a serpentina lungo rispettivi piani tra loro sostanzialmente paralleli, subiscono tutti lo stesso carico termico e quindi operano tutti allo stesso modo.
- Questo comporta una distribuzione ottimale delle temperature all'interno del letto 3, senza il rischio di fughe di temperatura, ed uno scambio termico efficiente tra i reagenti gassosi ed il fluido di raffreddamento o riscaldamento a tutto vantaggio della resa di conversione e dei consumi energetici.
- Nell'esempio di figura 1, il mantello 2 è disposto verticalmente e i tubi 13 si sviluppano a serpentina nel letto 3 catalitico lungo un piano che è preferibilmente sostanzialmente orizzontale.
- Nulla vieta comunque di disporre i tubi 13 in maniera 30 diversa, ad esempio in gruppi di tubi tra loro sovrapposti e che si sviluppano lungo piani verticali.

14

In entrambi i casi, i tubi 13 si trovano ad essere perpendicolari rispetto alle pareti laterali 4 e 5, così come all'asse longitudinale 18 del mantello 2 nel caso di un reattore verticale, mentre sono sostanzialmente paralleli rispetto alla direzione di attraversamento del letto 3 da parte del flusso di reagenti gassosi.

Risulta evidente, che nell'ambito della presente invenzione è pure previsto un reattore 1 comprendente una pluralità di letti 3 catalitici i quali possono essere attraversati da un numero variabile di tubi 13 (almeno uno) a seconda del grado di esotermicità o endotermicità della reazione e/o delle dimensioni del letto catalitico.

- 15 È altresì compreso nell'ambito della presente invenzione un reattore 1 comprendente uno o più letti catalitici attraversati dal flusso di reagenti con moto prevalentemente radiale dal centro (condotto 10) verso la periferia esterna (intercapedine 8).
- Inoltre, secondo una ulteriore forma di realizzazione 20 della presente invenzione - non rappresentata - è possibile prevedere un mantello esterno orizzontale comprendente uno o più letti catalitici l'asportazione da tubi per attraversati l'alimentazione del calore, che si sviluppano 25 serpentina lungo piani perpendicolari rispetto alle pareti gas-permeabili di ingresso e uscita dei reagenti gassosi. Anche in questo caso, le pareti forate laterali del o dei letti catalitici sono parallele rispetto all'asse longitudinale del mantello. 30

I tubi 13 possono venire collegati ai bocchelli 15 e 17: singolarmente, e quindi con un condotto 14 di alimentazione, rispettivamente 16 di estrazione del fluido raffreddante o riscaldante per ogni tubo 13; a

15:15

15

gruppi di almeno due tubi, e cioè con un condotto 14 e 16 per ogni gruppo di tubi 13; oppure tramite un unico condotto 14, rispettivamente 16, con i tubi 13 tutti collegati tra loro.

- Preferibilmente, i tubi 13 sono collegati tra loro in 5 corrispondenza di rispettive estremità libere gruppi di almeno due tubi, ogni gruppo essendo collegamento di fluido con un condotto alimentazione rispettivamente 16 di estrazione del 10 raffreddamento o riscaldamento. condotti 14 e 16 sono a loro volta in collegamento di fluido con il bocchello 15 rispettivamente con il bocchello 17.
- Il collegamento tra singoli tubi 13 adiacenti avviene 15 per mezzo di tubi di raccordo, tutti indicati con 19, come meglio evidenziato nelle figure 2 e 3.

Nel caso di una pluralità di condotti 14 e 16, questi si immettono nei rispettivi collettori 14a e 16a così come nei rispettivi tubi 13 preferibilmente in posizione angolarmente sfalsata tra loro.

Nell'esempio di figura 1, sono rappresentati il primo e l'ultimo gruppo di tubi 13 compresi nel letto catalitico 3.

fluido di raffreddamento o riscaldamento viene 25 immesso tramite i rispettivi condotti corrispondenza di una estremità dei tubi 13 inferiori di ogni gruppo, fatto passare attraverso i tubi 13 di ogni gruppo dove avvengono scambi termici di pari ed infine estratto tramite i rispettivi 30 condotti 16 da una estremità dei tubi 13 superiori di ogni gruppo.

10

15

Alternativamente, è possibile prevedere un attraversamento dei gruppi di tubi da parte del fluido di raffreddamento o riscaldamento dall'alto verso il basso. In questo caso, il fluido viene alimentato ai tubi 13 attraverso i condotti 16 ed estratto attraverso i condotti 14.

Da notare come la struttura che ne risulta è semplice da realizzare e facile da operare, e come non sia richiesta la disposizione di una piastra tubiera, con conseguenti risparmi nei costi di investimento e manutenzione rispetto alla tecnica nota.

Rispetto al caso dove ogni singolo tubo 13 è collegato separatamente ai bocchelli 15 e 17, la forma di realizzazione rappresentata in figura 1 risulta essere più vantaggiosa, in particolare per reattori lunghi e quindi con tanti tubi 13, in quanto viene ridotto (in ragione del numero di tubi 13 componente ogni gruppo) il numero di condotti 14 e 16.

Inoltre, rispetto al caso dove tutti i tubi 13 sono 20 collegati tra loro, con i tubi alle estremità inferiore collegati unico condotto superiore ad un rispettivamente 16, la forma di realizzazione rappresentata in figura 1 risulta essere vantaggiosa dato che vi è una minore perdita di carico del fluido 25 di raffreddamento o riscaldamento.

D'altro canto, con i tubi 13 tutti collegati tra loro, la struttura che ne risulta è particolarmente semplice da realizzare in quanto necessita solo un condotto 14 di alimentazione ed un condotto 16 di estrazione del fluido raffreddante o riscaldante.

Preferibilmente, il o i tubi 13 attraversanti il letto 3 catalitico per l'asportazione o l'alimentazione di

10

EP99111538.7

calore sono realizzati con una serpentina a forma di spirale come evidenziato nelle figure 4 e 5.

La conformazione a spirale dei tubi 13 è infatti risultata essere particolarmente vantaggiosa sia in termini di efficienza di scambio termico che per quanto riguarda la semplicità e la flessibilità costruttiva.

Il tubo 13 conformato a spirale può adattarsi alle dimensioni più svariate del letto 3 catalitico ed in particolare riesce a coprire tutte le zone dello stesso permettendo in questo modo un efficace scambio termico in qualsiasi parte del letto.

Inoltre, a secondo della quantità di calore da asportare o da alimentare il tubo 13 a spirale può venire realizzato con spire più o meno ravvicinate.

- 15 Nell'esempio di figura 4, il tubo a spirale è realizzato con un passo di avvolgimento costante, e cioè con una distanza tra le varie spire uguale lungo tutta la spirale.
- A questo proposito, risultati particolarmente vantaggiosi sono stati ottenuti variando il passo di avvolgimento col variare del raggio della spirale, in modo da adattarsi al profilo di temperatura dei reagenti gassosi all'interno del letto 3 catalitico, seguendone tutte le variazioni termiche.
- In questo caso, evidenziato in figura 5, la distanza tra le varie spire varia con il variare del raggio della spirale e, preferibilmente, il passo di avvolgimento viene fatto diminuire con l'aumentare del raggio della spirale.
- 30 Al fine di tenere conto in modo ottimale della diversa distribuzione del flusso di reagenti gassosi nel letto 3 catalitico, in particolare nel caso di un letto

assiale-radiale, i tubi 13 possono venire vantaggiosamente disposti ad una distanza - tra i piani di due tubi adiacenti - variabile.

Così facendo, è possibile adattare la distanza dei tubi 13 a secondo della quantità di calore da asportare o da alimentare, in altre parole seguendo il profilo di temperatura nel letto 3 catalitico, a tutto vantaggio del grado di efficienza di scambio termico il quale si ripercuote favorevolmente sulla resa di conversione e sui consumi energetici.

Secondo questa forma di realizzazione rappresentata - si è quindi in grado di ottenere una concentrazione di tubi 13 maggiore (distanza tra i piani di due tubi adiacenti più ravvicinata) dove vi è 15 una portata del flusso di reagenti gassosi maggiore e carichi termici più elevati, concentrazione di tubi 13 minori (maggiore distanza tra i piani di due tubi adiacenti) dove la portata è più bassa.

- In figura 6 è rappresentato un reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche secondo una ulteriore forma di realizzazione della presente invenzione.
- In tale figura, i particolari del reattore 1 strutturalmente e funzionalmente equivalenti a quelli illustrati nella figura 1 verranno indicati con gli stessi numeri di riferimento e non saranno più oltre descritti.
- Nell'esempio di figura 6, è importante notare che in corrispondenza di un predeterminato piano orizzontale sono previsti due tubi 13 tra loro affiancati, come evidenziato in figura 7. Nei tubi 13 affiancati avvengono scambi termici di pari entità.

15

20

25

30

Tutti i tubi 13 di ogni serie 20 rispettivamente 21 sono vantaggiosamente collegati tra loro per mezzo dei tubi di raccordo 19, cosi da formare due serie parallele di tubi 13, generalmente indicate con 20 e 21. Inoltre ogni serie 20, 21, è collegata tramite rispettivi tubi 13 inferiore e superiore ad un unico condotto 14 di alimentazione e 16 di estrazione del fluido raffreddante o riscaldante.

In particolare, i tubi 13 si sviluppano con una serpentina ad arco di cerchio di lunghezza crescente da una zona centrale ad una zona periferica.

I tubi 13 di ogni serie 20, 21, possono naturalmente venire disposti all'interno del reattore di figura 6 suddivisi a gruppi come nel caso dell'esempio di figura 1.

La differenza principale con l'esempio di figura 1 è data dal fatto che nell'esempio di figura 1 ogni singolo tubo 13 si estendeva lungo tutta la sezione del letto 3 catalitico mentre ora i tubi 13, che sono affiancati, occuperebbero rispettivamente un settore di cerchio (metà sezione). Questo comporta un raddoppio del numero di tubi ed eventualmente anche dei condotti 14 e 16 di alimentazione rispettivamente estrazione del fluido raffreddante o riscaldante così come dei tubi di raccordo 19.

Questo tipo di conformazione dei tubi può per reazioni estremamente esotermiche endotermiche in quanto consente di avere due alimentazioni ed estrazioni fluido del di raffreddamento 0 riscaldamento, aumentando così l'efficienza di scambio termico.

A questo proposito, possono anche essere vantaggiosamente previste conformazioni con tre o più

10

15

25

15-06-1999

tubi 13 a serpentina affiancati in corrispondenza di uno stesso piano orizzontale.

Il reattore secondo la presente invenzione può venire vantaggiosamente impiegato per l'effettuazione di sostanzialmente tutti i tipi di reazioni esotermiche o endotermiche. In particolare, esempi di reazioni esotermiche che bene si adattano ad essere effettuate con la presente invenzione possono essere: metanolo, ammoniaca, formaldeide, ossidazioni organiche (ad esempio ossido di etilene); mentre esempio di reazioni endotermiche possono essere: stirene, e metilbenzene.

Quale fluido per l'asportazione di calore (nel caso di reazioni esotermiche) viene preferibilmente impiegata acqua calda che si trasforma in vapore ad alto livello oppure sali fusi e oli diatermici. Fluidi termico, impiegati venire per possono pure analoghi di di calore nel caso l'alimentazione endotermiche.

Il funzionamento del reattore 1 per l'effettuazione di 20 reazioni esotermiche o endotermiche secondo l'invenzione è qui di seguito descritto.

Da notare come le condizioni operative di pressioni e temperatura dei reagenti gassosi alimentati al letto 3 catalitico così come del fluido di raffreddamento o riscaldamento passante attraverso i tubi 13 sono quelle convenzionali per il tipo specifico di reazione che si intende effettuare, e pertanto non verranno descritte con particolare dettaglio nel seguito della descrizione.

30 A titolo di esempio vengono date unicamente le condizioni operative per la sintesi del metanolo, e cioè: pressione di sintesi 50-100 bar, temperatura di

P.28

5

21

SPEC

sintesi 200-300 °C, pressione del vapore generato 15-40 bar.

Con riferimento alla figura 1, un flusso di reagenti gassosi viene alimentato al letto 3 catalitico attraverso il bocchello 9 di ingresso gas e fluisce al suo interno attraverso le pareti forate 4 e 7. Il letto 3 catalitico viene quindi attraversato con moto prevalentemente radiale (assiale-radiale) dai reagenti gassosi che a contatto con il catalizzatore reagiscono.

Il calore sviluppato durante la reazione di sintesi oppure richiesto per l'effettuazione di tale reazione viene asportato rispettivamente fornito da un fluido passante attraverso i tubi 13.

Tale fluido viene introdotto nel reattore 1 attraverso il bocchello 15 ed alimentato ai tubi 13 inferiori di ogni gruppo tramite i condotti 14. Da qui attraversa i tubi 13 del rispettivo gruppo che sono collegati in corrispondenza delle loro estremità libere da tubi di raccordo 19, viene estratto dai tubi 13 superiori dei relativi gruppi per mezzo dei condotti 16 ed evacuato dal reattore 1 tramite il bocchello 17.

Infine, il flusso di gas reagiti ottenuto nel letto 3 catalitico fuoriesce da quest'ultimo attraverso la parete forata 5, viene raccolto nel condotto 10 ed espulso dal reattore 1 tramite il condotto 1 di uscita gas.

Il funzionamento del reattore 1 di figura 6 è analogo a quello di figura 1, con l'eccezione che il fluido raffreddante fluisce contemporaneamente attraverso due serie 20 e 21 di tubi 13 tra loro affiancati. Inoltre, essendo i tubi 13 di ogni serie tra loro tutti collegati, il fluido di raffreddamento viene alimentato tramite un condotto 14 in corrispondenza di un tubo 13

25

15-06-1999

inferiore e risale tutto il letto catalitico 3 attraversando i tubi 13 prima di fuoriuscire dal tubo 13 superiore per essere estratto dal reattore 1 attraverso il bocchello 17.

Vantaggiosamente, è importante notare come i tubi 13 si sviluppano all'interno del letto 3 catalitico lungo un piano sostanzialmente parallelo rispetto alla direzione di attraversamento del letto catalitico da parte del flusso di reagenti gassosi.

10 \*\*\* \* \*\*\*

Da quanto più sopra esposto emergono con chiarezza i numerosi vantaggi raggiunti dalla presente invenzione, in particolare l'ottenimento di un reattore per l'effettuazione di reazioni esotermiche o endotermiche di semplice attuazione, affidabile e a bassi costi di investimento e manutenzione, che allo stesso tempo permette di operare ad alta resa di conversione, basse perdite di carico, bassi consumi energetici e con una elevata efficienza di scambio termico tra i reagenti gassosi ed il fluido di raffreddamento o riscaldamento.

23

EPO - Munich 15

1 5. Juni 1999

SPEC

#### RIVENDICAZIONI

- 1. Reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche o endotermiche comprendente:
- un mantello (2) esterno di forma sostanzialmente cilindrica, preferibilmente verticale;
  - almeno un letto (3) catalitico esteso in detto mantello (2) e comprendente contrapposte pareti forate (4, 5) laterali di ingresso di un flusso comprendente reagenti rispettivamente di uscita di un flusso comprendente reagiti;
  - almeno un tubo (13) attraversante detto almeno un letto (3) catalitico per il passaggio di un fluido di raffreddamento o riscaldamento;
- caratterizzato dal fatto che detto almeno un tubo (13)

  15 si sviluppa all'interno di detto almeno un letto (3)

  lungo un piano sostanzialmente perpendicolare rispetto
  a dette pareti (4, 5) laterali.
- Reattore secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che detto almeno un tubo (13) si sviluppa in detto almeno un letto (3) catalitico lungo un piano sostanzialmente orizzontale.
  - 3. Reattore secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che detto almeno un tubo (13) si sviluppa a serpentina, preferibilmente a forma di spirale.
- 4. Reattore secondo la rivendicazione 3, caratterizzato dal fatto che detta serpentina a forma di spirale presenta un passo di avvolgimento variabile col variare del raggio della spirale.

15-06-1999

- 5. Reattore secondo la rivendicazione 4, caratterizzato dal fatto che detto passo di avvolgimento diminuisce con l'aumentare del raggio della spirale.
- 6. Reattore secondo la rivendicazione l, caratterizzato dal fatto di comprendere una pluralità di tubi (13) disposti all'interno di detto almeno un letto (3) catalitico ad una distanza tra tubi (13) adiacenti variabile.
- 7. Reattore secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto di comprendere una pluralità di tubi (13) in detto almeno un letto (3) catalitico tra loro sovrapposti e collegati in corrispondenza di rispettive estremità libere.
- 8. Reattore secondo la rivendicazione 7, caratterizzato dal fatto che detti tubi (13) sono collegati tra loro a gruppi di almeno due tubi, ogni gruppo essendo in collegamento di fluido con un condotto (14, 16) di alimentazione rispettivamente estrazione di detto fluido di raffreddamento o riscaldamento.
- 9. Reattore secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che in corrispondenza di almeno un predeterminato piano sostanzialmente perpendicolare rispetto a dette pareti (4, 5) laterali in detto almeno un letto (3) catalitico sono previsti almeno due tubi (13) tra loro affiancati.
  - 10. Reattore secondo la rivendicazione 9, caratterizzato dal fatto che detti almeno due tubi (13) tra loro affiancati si sviluppano con una serpentina ad arco di cerchio di lunghezza crescente da una zona centrale di detto letto (3) ad una zona periferica dello stesso.

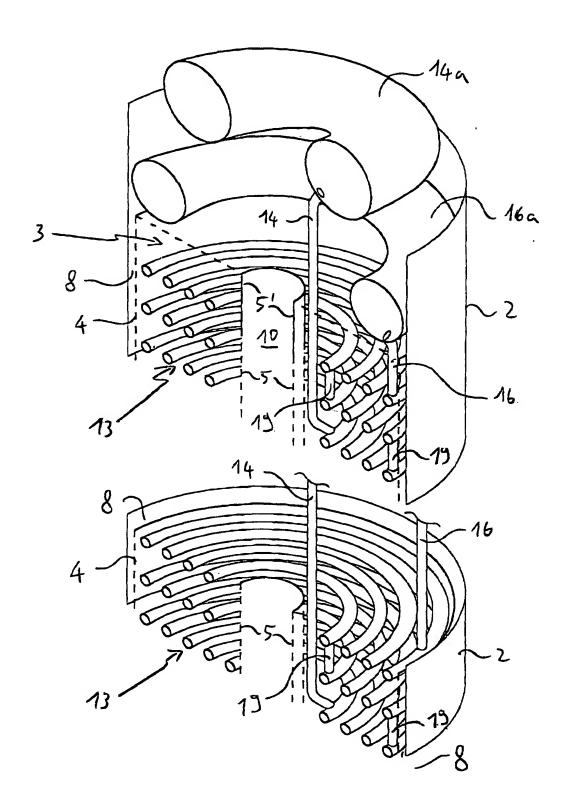


Fig. 2

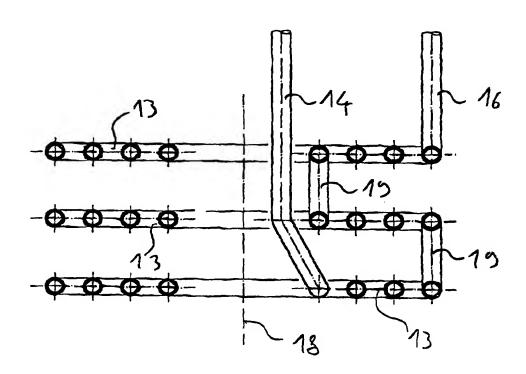
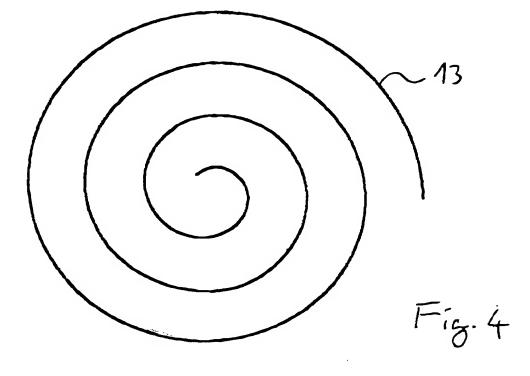
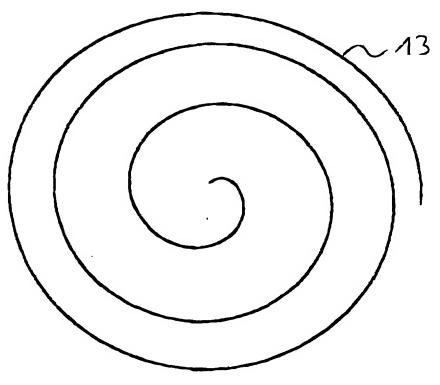


Fig. 3





Fiz 5

--- NR.483- -P.38-- SPEC

6/6

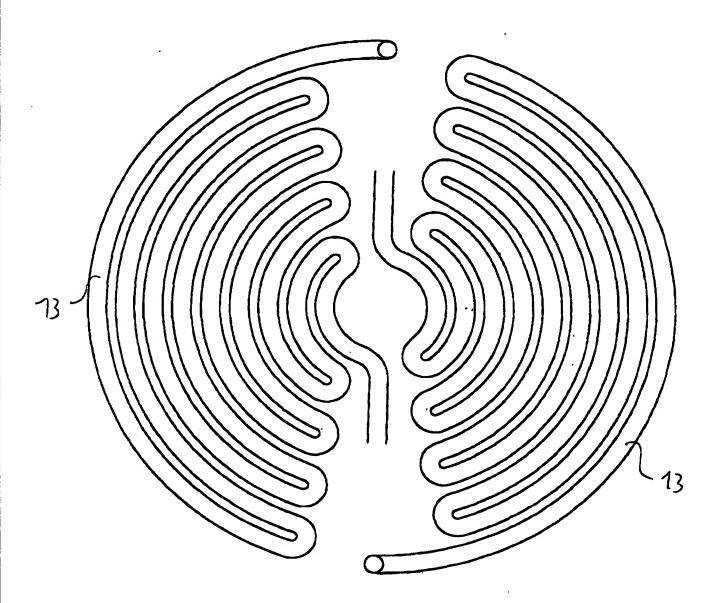


Fig. 7

10

NR.483 P.32

SPEC

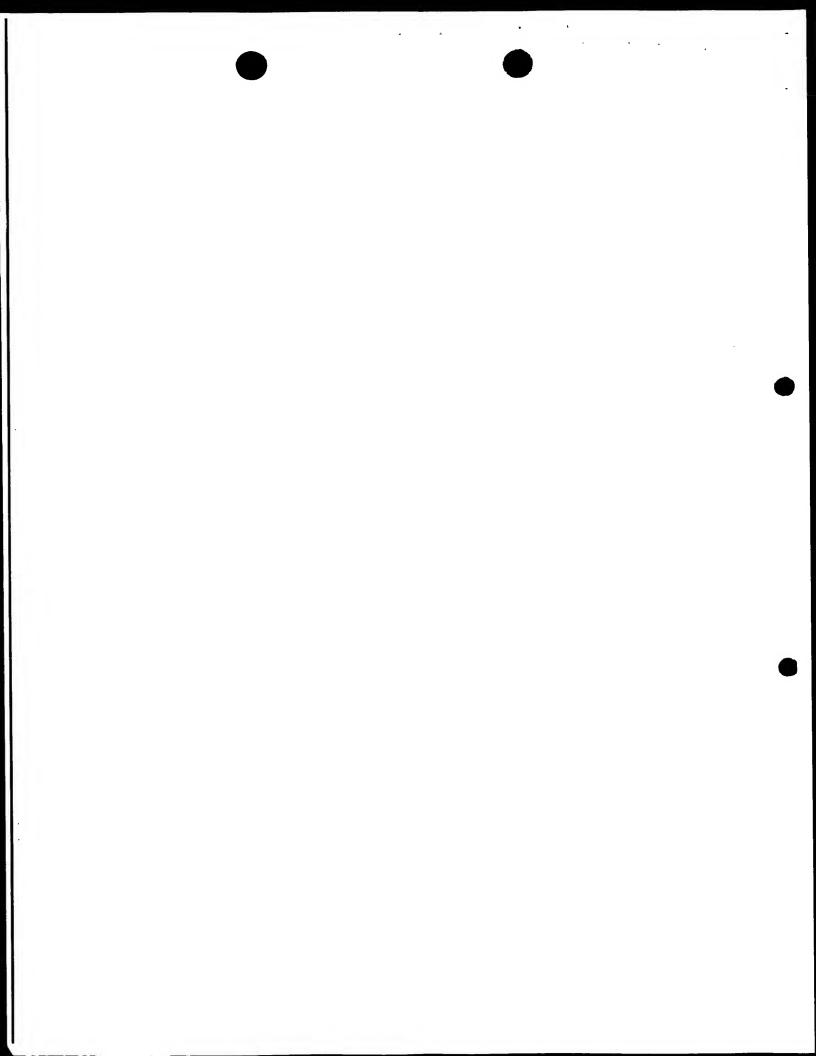
25

EPO - Munich 15

15. Juni 1999

#### RIASSUNTO

Un reattore isotermo per l'effettuazione di reazioni eterogenee esotermiche 0 endotermiche prevede all'interno di un letto (3) catalitico alloggiato in un apposito mantello (2) esterno almeno un tubo (13) per passaggio di un fluido di raffreddamento o riscaldamento il quale si sviluppa vantaggiosamente all'interno del letto (3) lungo piano sostanzialmente perpendicolare rispetto a contrapposte pareti forate (4, 5) laterali del letto (3) catalitico.



06-07-1999 EP99111538.7 DRAW 1/6 **EPO - DG 1** 06.07.1999 66 14a 16a 12-1000 13 9000 13 0000 19 4 19 0000 13 ~11

Fig. 1

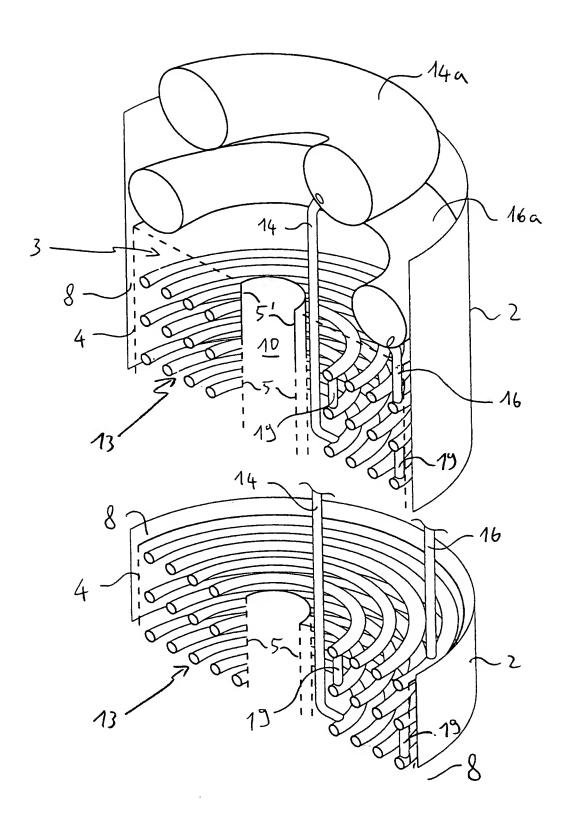


Fig. 2

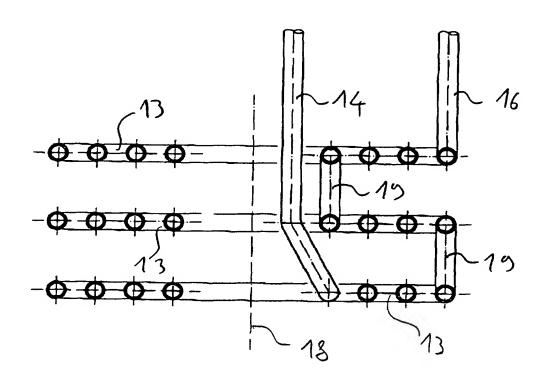
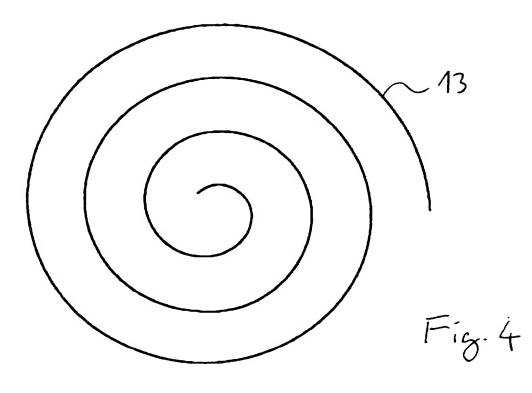


Fig. 3



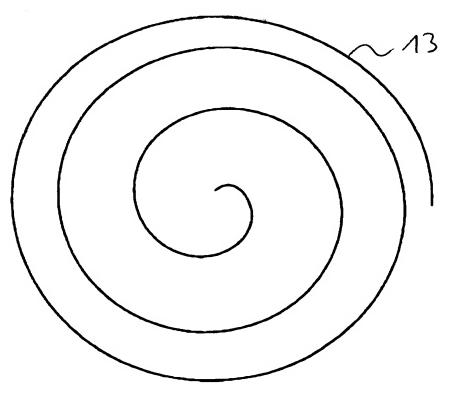
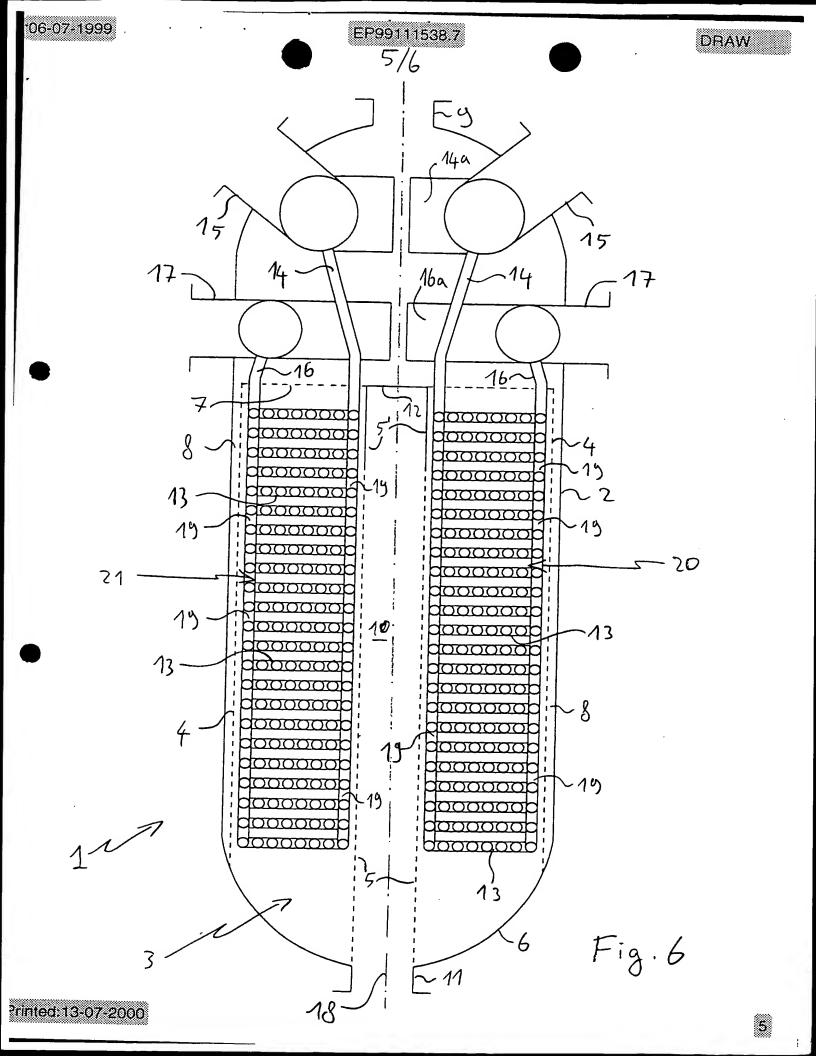


Fig 5



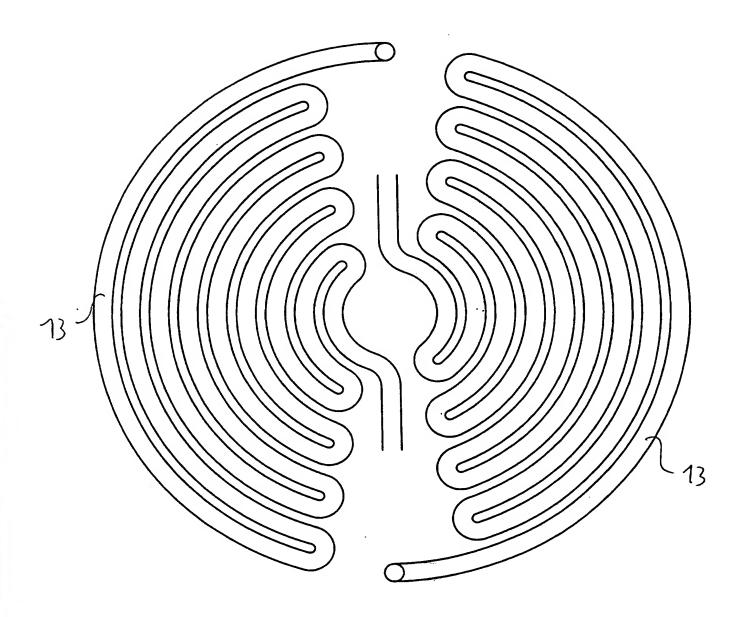


Fig. 7